

磁気ヘッド用Fe-Ru-Ga-Si系軟磁性合金に関する研究

著者	林 和彦
号	1164
発行年	1990
URL	http://hdl.handle.net/10097/9971

氏 名	林 和 彦
授 与 学 位	工 学 博 士
学位授与年月日	平成 2 年 11 月 14 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 5 条第 2 項
最 終 学 歴	昭 和 56 年 3 月 北海道大学大学院理学研究科物理学専攻 修士課程修了
学 位 論 文 題 目	磁気ヘッド用 Fe-Ru-Ga-Si 系軟磁性合金に関する研究
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 藤森 啓安 東北大学教授 本間 基文 東北大学教授 西澤 泰二

論 文 内 容 要 旨

第 1 章 序 論

近年の高密度・高品質な磁気記録への飛躍的な進歩は、磁気ヘッド材料の観点から見た場合、高い飽和磁束密度と、高周波での高い透磁率を持つ軟磁性材料の開発に支えられてきた。すなわち、従来から用いられてきたフェライト磁気ヘッドに替わり、パーマロイ、バルク・センダスト、アモルファス合金を使用した磁気ヘッドが順次実用化された。更に、1980年代には薄膜製作装置、特にスパッタリング装置の性能の向上により、熱安定性の高い結晶質の軟磁性材料を薄膜化することが、高信頼性・低コストのビデオ用磁気ヘッドの製造に最も適していると考えられるようになった。このような状況から、センダスト合金のスパッタ薄膜の勢力的な研究が行われた。

一方、記録媒体の高保磁力化と、磁気ヘッドの狭ギャップ、狭トラック化による磁気記録の高密度化への要請は留まることがない。このことは、磁気ヘッド用コア材料に、さらに高い飽和磁束密度と、高い透磁率を要求することになる。しかしながら、これまでのパーマロイ、センダスト合金、アモルファス合金を用いての高飽和磁束密度化は10～11kGが限界である。従って、高い飽和磁束密度を持つ磁気ヘッド材料には、これらとは異なる新しい材料の開発が不可欠であると考えられる。本研究では、現行の磁気ヘッド製造プロセスであるスパッタリング薄膜によって、高い飽和磁束密度を持つ新しい軟磁性材料の探査と開発を行った。

第 2 章 Ga 等を含む新しい Fe 系高飽和磁束密度軟磁性合金薄膜

上記の目的の対象として、Fe 基の結晶質合金を調べた。実験方法は、まず所定の組成の合金ター

ゲットを作製し、これを用いて高周波マグネトロンスパッタ装置で、約1~2 μm の薄膜を作製した。基板には結晶化ガラスを用い、スパッタガス圧は5 mTorrとした。次いで膜組成の分析と、熱処理による薄膜の保磁力の変化を評価した。まず、Fe-Al-Si系合金、次に高飽和磁束密度材料の基本系と考えられるFe-Si系合金、さらにこれらの系に各種元素を添加した系について検討した。その際に、軟磁性出現の必要条件である零磁歪 $\lambda_s=0$ 、零結晶磁気異方性 $K_1=0$ が成立すると考えられる組成系については特に詳しく検討した。すなわち、Fe-Al-Si系合金、(Fe-Si-Ge系合金)、Fe-Co-Si系合金、Fe-Co-Al-Si系合金について、軟磁気特性の組成依存性を調べた。さらに、Feと半金属元素の合金系、なかでもⅢ_b、Ⅳ_b族の元素の組み合わせを試みた。その結果、周期律表でAl、Siの下に位置するGa、Geを含む合金系で、良好な軟磁気特性が得られることを新たに見いだした。具体的には、Fe-Ga-Si系、Fe-Al-Ge系合金であり、これらの合金の1 μm 厚さの薄膜は、熱処理することにより1 Oe以下の保磁力が得られることが判った。このうち、特に軟磁気特性が優れているFe-Ga-Si系合金薄膜の保磁力と飽和磁束密度の組成依存性を図1に示す。この図から、最も優れた軟磁気特性として、 $B_s=13\text{kG}$ 、 $H_c=0.1\text{Oe}$ という値が得られることが判る。

周知の様に、軟磁気特性を支配する重要な因子は結晶磁気異方性と磁歪である。これらが零になり得るか否かを多数の系で推測し、三つに分類した結果を表1に示す。またこの三つのタイプについて、零結晶磁

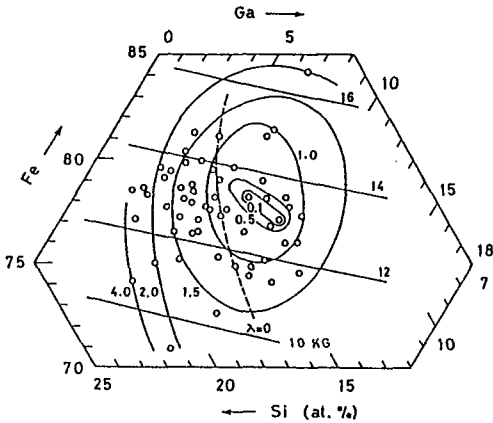


図1 Fe-Ga-Si系合金薄膜の保磁力、飽和磁束密度、零磁歪線（破線）の組成依存性、500°C熱処理後、1 μm 膜厚

I	II	III	IV*
$K_1=0^*$ $\lambda=0^*$	$K_1 \neq 0$ $\lambda=0$	$K_1=0$ $\lambda \neq 0$	$K_1 \neq 0$ $\lambda \neq 0$
(FeNi) FeAlSi FeGaSi FeAlGe FeGaGe FeCoGaSi FeCoAlGe FeCoSi	(FeCo) FeSi FeSi+TM ^e FeGe FeGe+TM ^e FeSiGe	(FeCo) FeAl+TM ^e FeGa? FeGa+TM ^e FeAlGa	FeP ^f FeB ^f Fe+TM ^e FeGa? FeSn FeIn ^f FeSb FeCoSnAl etc.

- a. タイプⅣのターゲットには多相状態のものがある
- b. よく知られているものを除いて、このタイプは $K_1=0$ となると予想した
- c. (110) 配向した薄膜の $\lambda=0$ 領域の近傍で、必ず多結晶の $\lambda_s=0$ が成立する
- d. 成膜直後は非晶質状態である
- e. TM=Tl, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Ta, W, Co, Ru, Ni
- f. 固相分離

表1 各種合金系の結晶磁気異方性と磁歪の観点からの分類

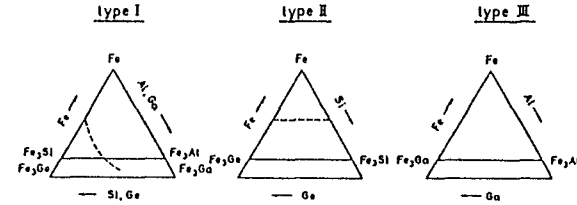


図2 表1のタイプⅠ～Ⅲの系の零結晶磁気異方性（実線）と零磁歪（破線）組成線の振舞いの予測

気異方性組成線と零磁歪組成線の三元組成図上での振舞いを予測したものが図2である。これらの予測から、Fe-Ga-Si系合金では結晶磁気異方性と磁歪が共に零になる組成が存在すると判断される。このことが、本研究で得られたFe-Ga-Si系合金薄膜の優れた軟磁気特性の原因と考えられる。

第3章 Fe-Ru-Ga-Si系軟磁性合金薄膜の諸特性に及ぼすRuの効果

前章で明らかにしたように、Fe-Ga-Si系合金は高飽和磁束密度の新しい軟磁性材料である。しかしながら、この合金系をビデオ磁気ヘッド材料として利用するには、なお種々の特性に改善の必要がある。そこで本章では、第四元素の添加によりそれらの諸特性の改善を試みた。その中でも、最も重要な点は、

1. 高い飽和磁束密度を低下させないこと。
2. 軟磁気特性の熱安定性を改善すること。
3. 耐摩耗性を改善すること。

の三つである。これらの改善に有効な添加元素として、周期律表左側の元素は耐摩耗性向上に効果が期待できるが、磁化を急激に減少させる。他方、右側の元素は磁化の減少は小さいものの、耐摩耗性改善が期待できない。従って、本研究では中間に位置する元素であるRuに注目した。

3.1 飽和磁束密度

図3に、Fe-Ga-Si系合金薄膜に種々の元素を添加したときの、飽和磁束密度の変化を示す。最初に予想した通り、Ruの添加は他の元素の添加と比べて明らかに飽和磁束密度の減少が少ないことが判る。

3.2 軟磁気特性とその熱安定性

次に、Fe-Ga-Si系合金薄膜にRuを添加したときの軟磁気特性について調べた。図4は、Fe-Ga-Si系合金薄膜において、FeとRuを置換していったときの磁化曲線の変化を示したものである。こ

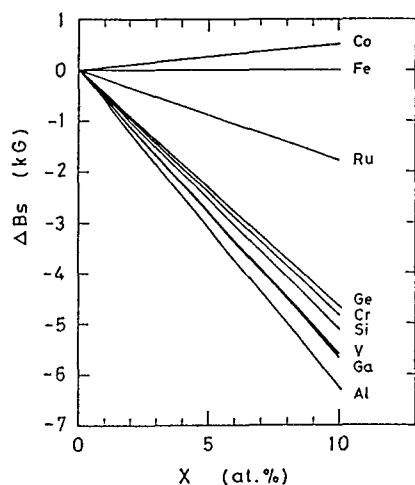


図3 Fe_{86-x}M_xSi₁₄合金薄膜の飽和磁束密度の変化

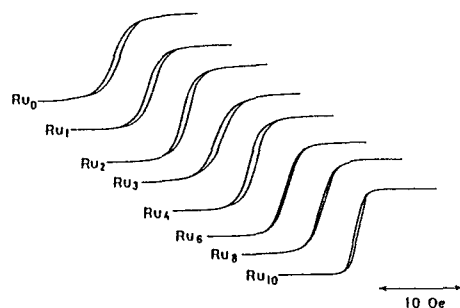


図4 Fe_{76-x}Ru_xGa₇Si₁₇合金薄膜の磁化曲線、550°C熱処理後、2 μm膜厚

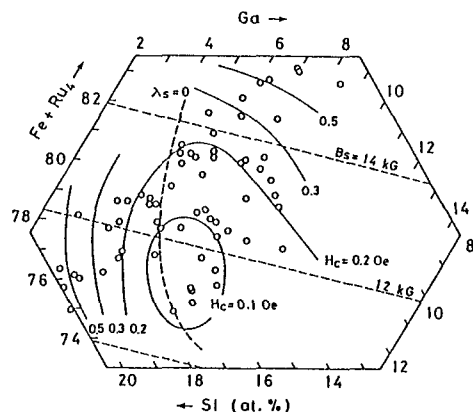


図5 Fe-Ru-Ga-Si系擬三元合金薄膜の保磁力、飽和磁束密度、零磁歪線(破線)の組成依存性、550°C熱処理後、3 μm膜厚

の図から、Ruを添加すると、低保磁力化することが判る。Ru量を4at%に固定して、熱処理後の薄膜の保磁力の組成依存性を詳しく調べたのが図5である。この図で、上方FeとRuの合算量を示す。この検討の結果、最も優れた軟磁性を示す中心組成は飽和磁束密度にして約12kG、また軟磁性領域もFe-Ga-Si系基本合金に比較して大幅に拡大していることが判明した。

図6にはRu量が0, 4, 8at%の場合の保磁力の熱処理温度依存性を示す。この図から、Fe-Ga-Si系では450℃位の熱処理が最適で、それ以上の温度では保磁力が増加するのに対し、Ru4at%添加系では650℃位まで安定になり、8at%添加系では850℃でも保磁力は全く劣化しないことが判る。また保磁力はRu量の増加と共に顕著に低下しており、従来のセンダスト合金薄膜では得られない40mOeという極めて小さな値が得られる。このRuの添加による軟磁気特性の安定化の原因は、Ruの添加によって、Fe-Ga-Si系合金のDO₃構造が安定化するためと考えられるが、詳しくは状態図の検討が必要である。

3.3 耐摩耗性

複合磁気ヘッドにおいて、金属膜の磨耗はスペーシングロスの増大をもたらし、短波長記録では大きな損失となる。またギャップデプスの小さいヘッドの長寿命化のためにもヘッド材料の耐摩耗性向上は非常に重要である。本章では、実験の容易な大型VTRと鋳造バルク試料を用いたダミーヘッド法により、耐摩耗性の評価を行なった。図7にその結果を示す。Fe-Ga-Si系合金は、センダスト合金に比べ耐摩耗性が著しく劣るが、Ruを4～8at%添加することで逆にセンダスト合金の1/3～1/4の磨耗量になっており、単結晶フェライトの値に近づいている。

また、Ruの添加は、耐食性の向上、熱膨張係数の低減、スパッタ膜内部応力の軽減にも顕著な

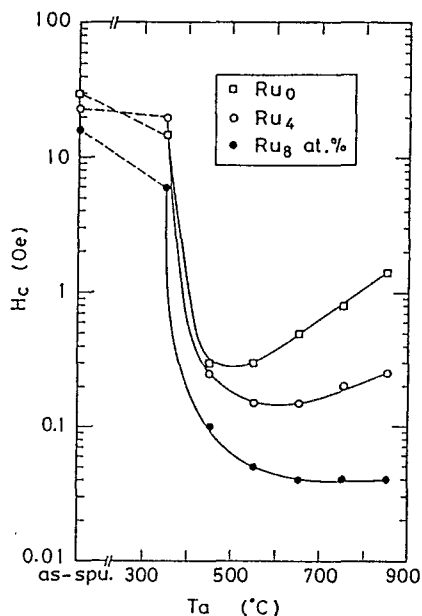


図6 $\text{Fe}_{76-x}\text{Ru}_x\text{Ga}_7\text{Si}_{17}$ ($x=0, 4, 8$ at%) 合金薄膜の保磁力の熱処理温度依存性, 8 μm 膜厚

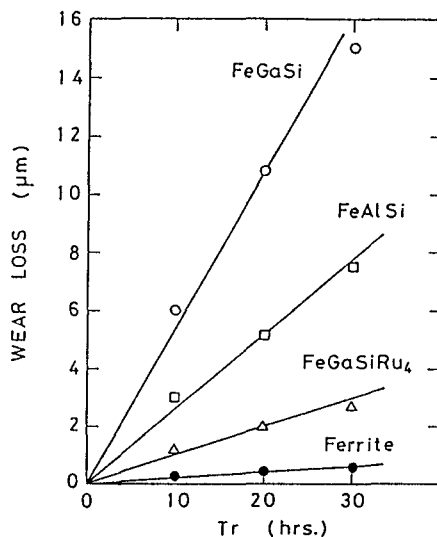


図7 各種ヘッド材料の磨耗量対走行時間

効果を示し、結果として Fe-Ru-Ga-Si 系合金薄膜は磁気ヘッド材料として用いるのに適した、非常に優れた材料であることが判った。

第 4 章 Fe-Ru-Ga-Si 系単結晶合金の磁歪と結晶磁気異方性

良く知られているように、軟磁気特性の出現条件は零結晶磁気異方性と零磁歪である。この条件が Fe-Ga-Si 系及び Fe-Ru-Ga-Si 系で成立しているか否かを確認するために、本章ではブリッジマン法でこれらの合金系の単結晶を作製し、ストレインゲージ法で磁歪を、トルク法で結晶磁気異方性を測定した。図 8 に、Ru=4 at% 添加した Fe-Ga-Si 系合金の λ_{100} 、 λ_{111} 及び $K_1=0$ の組成線を示す。Ru を添加しないときは、これらの線に交点はないが、Ru を 4 at% 以上含む系では、 λ_{100} 、 λ_{111} 及び K_1 が共に零になる組成が存在する。従って、Fe-Ga-Si 系に Ru を添加することは、軟磁気特性を得るための必須条件とみなすことができる。

しかしながら、単結晶合金によるこれら零組成線と、前章までに述べた薄膜材料の保磁力の等高線とは、必ずしも対応していない。この原因の一つとして、DO₃ 規制相の安定性が考えられるが、その解明には今後の研究が必要である。

第 5 章 Fe-Ru-Ga-Si 系合金薄膜のビデオ磁気ヘッドへの応用

センダスト合金等のスパッタ薄膜を用いた磁気ヘッドの低コスト化と特性改善のために、ヘッド構造の改良への努力が続けられてきた。工業的な生産性の面から見た場合には、図 9 に示した平行模型メタル・イン・ギャップ (MIG) ヘッド構造が最も優れている。このヘッドはその簡単な構造から製造上のメリットは非常に大きい反面、メ

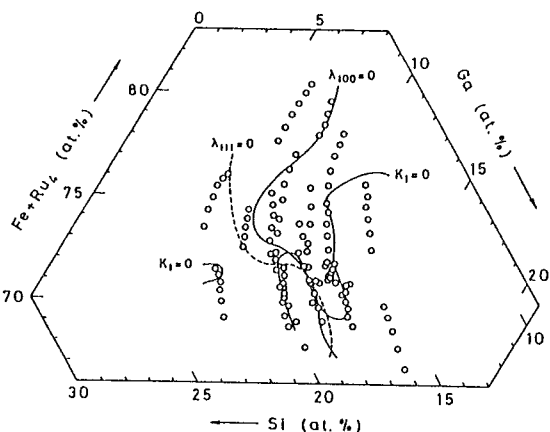


図 8 Fe-Ru-Ga-Si 系単結晶合金 (Ru=4 at%) による K_1 , λ_{100} , $\lambda_{111}=0$ の組成依存性

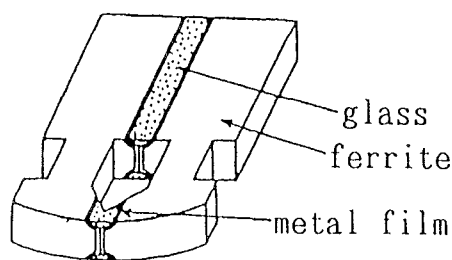


図 9 テープ摺動面から見た平行模型メタルインギャップ (MIG) 磁気ヘッドの構造

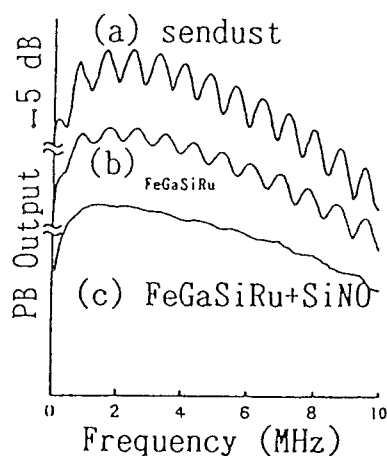


図 10 平行模型 MIG 磁気ヘッドに、センダスト合金薄膜、Fe-Ru-Ga-Si 系合金薄膜、更に 50 Å の SiNO 下地膜を用いたときの再生出力の周波数うねり

タルとフェライトの界面に反応層、即ち軟磁気特性の劣化した層による擬似ギャップが生じて、これが本来のメインギャップとの間に干渉を起こし、再生出力特性に周波数うねりを生じさせてしまうという欠点を有する。ところが、この金属膜として Fe-Ru-Ga-Si 系合金膜を用いると、図10に示したように出力うねりが大幅に減少した。更に、フェライトとの界面に50 Åの Si-N-O スパッタ膜を成膜することで、うねりは完全に抑制された。この原因は、Fe-Ru-Ga-Si 系合金が高耐食性であるために、フェライトとの界面での反応が少なく、反応層（擬似ギャップ）が極めて薄く抑えられるためと考えられる。

以上に述べたようなメリットにより、Ru 量 8 at%を用いた Fe-Ru-Ga-Si 系合金膜は、SOFMAX（ソフマックス）という商標名で、8 mm VTR 用磁気ヘッド、2 インチ FD 用・HD 用コンボジット磁気ヘッド、R-DAT 用磁気ヘッド等に、広く実用化された。

第 6 章 総 括

本研究で得られた結果を総括し、要約を記述した。

審 査 結 果 の 要 旨

磁気記録は高度情報化社会を支える必要不可欠なものとして発展してきているが、情報記録量の高密度化と記憶・再生の信頼性のさらなる向上が要望されている。本論文は、磁気ヘッドの磁心に有用な高磁束密度、高透磁率、高耐磨耗性の新しい軟磁性材料“Fe-Ru-Ga-Si系スパッタ合金薄膜”を開発し、それにより磁気記録の性能を大幅に向上できることを明らかにした成果をまとめたもので全編6章よりなる。

第1章は序論であり、本研究の背景と目的を述べている。

第2章では、高記録密度用ヘッド材料に適した高飽和磁束密度の軟磁性薄膜を、スパッタ法を用いて広範囲なFe系3元ないし4元合金について探索し、高飽和磁束密度と低い保磁力を有する新しい軟磁性合金がFe-Al-Ge, Fe-Ga-(Ge, Si), Fe-Co-Ga-(Ge, Si)などの系に存在することを見いだしている。中でも、81at%Fe-8Ga-11Si近傍のスパッタ薄膜は飽和磁束密度13kG、保磁力0.10eの優れた特性を示すことを知見している。

第3章では、Fe-Ga-Si系スパッタ薄膜の諸特性を総合的に向上させるために添加元素の効果を調べている。4～8at%のRuを添加することにより、保磁力が0.040eまでに低下し600～800℃程度まで安定化すること、さらに耐磨耗性が従来のセンダストの約4倍までに改善されることなど高記録密度用薄膜磁気ヘッド材料にとって好都合な特性が得られることを見いだしている。

第4章では、Fe-Ru-Ga-Si系合金について、単結晶試料を用いた結晶磁気異方性と磁歪の測定を行い、Ruを含まないFe-Ga-Si系では結晶磁気異方性と磁歪は非常に小さくなるものの共に零になる組成は存在しないが、Ruを4～8at%添加したものにはそれが存在すること、またセンダストと類似のDO₃規則相がRuの添加によって安定化することを確認している。さらに、これが本合金系の軟磁性の原因になっていることを明らかにしている。

第5章では、本合金のビデオ用薄膜磁気ヘッドへの応用を磁気ヘッド構造の最適化設計をも含めて検討し、それを実証している。8at%Ruを含むFe-Ru-Ga-Si合金を用いた平行膜型メタル・イン・ギャップヘッドでは、擬似ギャップが無く再生出力うねりの少ない優れた特性を示すことを確認し、その原因はRuとGaの作用によってGa₂O₃が形成され、擬似ギャップを抑制することにあることを明らかにしている。

第6章は総括である。

以上要するに本論文は、広範囲のFe系多元合金を系統的に探索することにより、磁気特性と同時に熱安定性と耐磨耗性の優れた新しいFe系軟磁性合金を開発し、その新合金によって従来の欠点を克服した高密度磁気記録ビデオ用薄膜ヘッドの作製が可能であることを明らかにしたもので、材料物性学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。